

**PRODUCTION OF ALUMINUM NITRIDE SINTERED COMPACT**

Patent Number: JP6219850  
Publication date: 1994-08-09  
Inventor(s): TANAKA KAZUKO; others: 02  
Applicant(s):: ASAHI GLASS CO LTD  
Requested Patent: ☐ JP6219850  
Application Number: JP19930034131 19930129  
Priority Number(s):  
IPC Classification: C04B35/58  
EC Classification:  
Equivalents:

---

**Abstract**

---

**PURPOSE:**To obtain a dense AlN sintered compact having  $\geq 99.5\%$  relative density and contg. few pores.

**CONSTITUTION:**When an AlN sintered compact is produced, part of powdery AlN as starting material is coated with hydrolyzed yttrium alkoxide, mixed with the remainder of the powdery AlN and sintered.

---

Data supplied from the esp@cenet database - I2

(19)日本国特許庁(JP)

(12)公開特許公報(A)

(11)特許出願公開番号

特開平6-219850

(43)公開日 平成6年(1994)8月9日

(51)Int.Cl.<sup>5</sup>

C04B 35/58

識別記号

104 S

庁内整理番号

FI

技術表示箇所

審査請求 未請求 請求項の数1 FD (全 3 頁)

(21)出願番号 特願平5-34131

(22)出願日 平成5年(1993)1月29日

(71)出願人 000000044

旭硝子株式会社

東京都千代田区丸の内2丁目1番2号

(72)発明者 田中 和子

神奈川県横浜市神奈川区羽沢町1150番地

旭硝子株式会社中央研究所内

(72)発明者 川上 圭一

神奈川県横浜市神奈川区羽沢町松原1160番

地 エイ・ジー・テクノロジー株式会社内

(72)発明者 米森 重明

神奈川県横浜市神奈川区羽沢町1150番地

旭硝子株式会社中央研究所内

(74)代理人 弁理士 泉名 謙治

(54)【発明の名称】 窒化アルミニウム焼結体の製造方法

(57)【要約】

【目的】 相対密度が99.5%以上のポアの少ない緻密な窒化アルミニウム焼結体を得る。

【構成】 窒化アルミニウム焼結体の製造方法であって、窒化アルミニウム原料粉末のうちの一部にイットリウムアルコキシドを加水分解してコーティングし、これを残りの窒化アルミニウム粉末と混合して、焼結する。

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】窒化アルミニウム焼結体の製造方法であって、窒化アルミニウム原料粉末のうちの一部にイットリウムアルコキシド処理をし、これを残りの窒化アルミニウム原料粉末と混合して、焼結することを特徴とする窒化アルミニウム焼結体の製造方法。

## 【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】本発明は半導体実装用基板などに用いる窒化アルミニウム焼結体の製造方法に関するものである。

【0002】

【従来の技術】近年、半導体素子の高集積化、高機能化が進んだため、従来のアルミナ基板ではSiチップの発熱量の増大、チップサイズの大型化による熱膨張のミスマッチの問題への対応が難しく、新しい高熱伝導性絶縁材料が求められている。

【0003】窒化アルミニウム(AlN)は高熱伝導性の他に熱膨張率がSiチップに近く、また高電気絶縁性などの優れた材料特性を有するため、半導体実装用基板材料として特に注目を集めている。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】ところで、窒化アルミニウムは難焼結性物質であるため緻密な焼結体を得ることが困難であり、たとえ焼結助剤を加えずにホットプレス等で緻密に焼結させても原料中に含まれる不純物酸素により熱伝導率が著しく低下することが知られていた。この不純物酸素を取り込んで窒化アルミニウム焼結体の緻密化、高熱伝導化をはかるため各種の焼結助剤の添加が検討されてきており、特に酸化イットリウムを添加することにより、窒化アルミニウムの焼結過程において不純物酸素が取り込まれてアルミン酸イットリウムを生成し、焼結体の熱伝導率を向上させ得ることがわかっている。

【0005】しかし、酸化イットリウムの粉末を原料粉末と一括混合する従来の混合方法においては、成形体中に酸化イットリウムの密度ムラが発生し、その結果、一部に焼結不足が生じ、ポアの発生・強度の低下が起こるといった問題がおきている。このため、均一に酸化イットリウムを分散させる方法としてイットリウムアルコキシドを始めとする各種のイットリウム塩を用いて窒化アルミニウム粉末上に表面処理を施すという方法が検討されてきたが、この方法は原料粉末の凝集を招くために、表面処理後の再粉碎を必要とするなど、成形体の成形性を著しく損なうものであった。

【0006】

【課題を解決するための手段】本発明は前述の課題を解決するべくなされたものであり、窒化アルミニウム焼結体の製造方法であって、窒化アルミニウム原料粉末のうちの一部にイットリウムアルコキシド処理をし、これを

残りの窒化アルミニウム原料粉末と混合して、焼結することを特徴とする窒化アルミニウム焼結体の製造方法を提供するものである。

【0007】以下、本発明について詳細に説明する。なお、以下%は重量%を意味する。まず、原料となる窒化アルミニウム粉末としては不純物酸素が3%以下、好ましくは1.5%以下であることが望ましい。その粒度は平均粒径が10μm以下好ましくは2μm以下であることが望ましい。平均粒径が10μm以上の粉は結晶性が低下するおそれがあり、好ましくない。

【0008】本発明において焼結助剤として用いるイットリウムアルコキシドとしてはイットリウムのメトキシド、エトキシド、n-プロポキシド、イソプロポキシド、n-ブトキシド、sec-ブトキシド、tert-ブトキシドの単独あるいは複合体が挙げられる。添加量については、多すぎると窒化アルミニウム以外の粒界相が増加し、熱伝導が低下するので好ましくは酸化イットリウムに換算して10%以下、特に好ましくは5%以下である。

【0009】本発明では、窒化アルミニウム原料粉末のうちの一部にイットリウムアルコキシドを用いて表面処理する。表面処理する窒化アルミニウム原料粉末は、全体の5%~50%が望ましい。5%以下では分散性が不良となり、また50%以上では凝集が多く成形性の低下を招くおそれがあるため、好ましくない。

【0010】表面処理の方法としては乾燥雰囲気中で有機溶媒中に溶解させたイットリウムアルコキシドに、窒化アルミニウム原料粉末を加え、攪拌しながら空気中の水分により加水分解させて、窒化アルミニウム原料粉末にコーティングする方法が簡便であるが、さらに条件を厳密に制御するために不活性雰囲気中で適量の水分を添加してもよい。

【0011】また、この際、溶解性を向上させ、加水分解条件を安定化させるためにアセチルアセトン等のキレート剤を添加してもよい。有機溶媒としてはメタノール、エタノール等のアルコール類、MEK、MIBK等のケトン類、1,1,1-トリクロロエタン等の塩素系有機溶剤が挙げられるが、イットリウムアルコキシドを適度に溶解するものであればこれらに限定されない。アルコキシドが完全に加水分解した後、速やかに有機溶媒を乾燥させ、表面処理された原料粉末を得る。

【0012】さらに不純物酸素を除去し、焼結体の熱伝導を向上させるために成形体中に炭素粉末が添加されることが好ましい。添加量については窒化アルミニウム原料に含まれる不純物酸素量、焼結助剤の種類とその量、焼成温度、保持時間などに依存するが、通常は、成形体中の窒化アルミニウム粉末に対し0.1重量%~3.0重量%であることが望ましい。炭素量が0.1重量%より少ないと熱伝導率の向上は期待できず、3.0重量%を超えると相対密度、体積抵抗、熱伝導率の低下を生じ

るおそれがあるので、いずれも好ましくない。

【0013】かかる表面処理した窒化アルミニウム粉末、炭素粉末、残りの窒化アルミニウム原料粉末に適当な有機バインダーを加えたものを有機溶剤を用いてボールミルで湿式混合し、スラリー化したものをドクターブレード法により成形しグリーンシートとする。

【0014】以上に述べた方法により作成したグリーンシートを空气中または非酸化性雰囲気下で脱脂する。脱脂は、空气中または不活性雰囲気中で炭素粉末の熱分解率が小さく、かつ有機バインダーが十分に分解される温度範囲で行う。具体的には350℃～500℃が望ましい。脱脂後、焼成炉からの炭素の侵入を防ぐために焼成用サヤに収納し不活性雰囲気下で1500℃～2000℃で焼成を行いボアの無い緻密な焼結体を得る。なお、分散状態の評価は焼結体のEPMA観察によることができる。

【0015】なお、成形法はドクターブレード法によるシート成形になんら限定されることなく、粉末プレス法、押し出し成形法、射出成形法のいずれによっても同様に酸化イットリウムの分散効果が得られる。

【0016】以上述べてきたように本発明の製造方法によれば、成形体中の酸化イットリウムの分散性を向上させ、これによって緻密な焼結体を作ることが可能である。

【0017】

【実施例】平均粒径が2.5μmであるような窒化アル\*

\*ミニウム原料粉末を用意し、このうちの一部について、表面処理を施した。表面処理を施した窒化アルミニウム原料粉末の割合は、表1に示したような種々の値とした。なお、表1で、0%とあるのは、表面処理を施さなかったもの、100%とあるのは、すべての窒化アルミニウム原料粉末に表面処理を施したものである。表面処理は、イットリウムトリイソプロポキシドをイソプロパノールに、酸化イットリウムに換算して3重量%溶解し、これに所定の量の窒化アルミニウム原料粉末を加え、空气中で1時間攪拌しながら加水分解させた。

【0018】表面処理した窒化アルミニウム原料粉末を乾燥させ、残りの窒化アルミニウム原料粉末と0.5重量%の炭素粉末、および有機バインダーとしてポリビニルブチラルを10重量%加え、ボールミルを用いて有機溶剤中で一括混合し、スラリー化した後成形し、グリーンシートとする。グリーンシートの成形性を表1に示す。成形性は窒化アルミニウム粉末すべてを表面処理したものに比べて良好であり、酸化イットリウム粉末を加えたものと同等であった。

【0019】これらのグリーンシートを空气中450℃、10時間という条件で脱脂後、1800℃において20時間焼成し焼結体を得た。こうして得られた焼結体の強度および相対密度を表1に併記する。

【0020】

【表1】

例	表面処理 の割合	密度 (g/cm <sup>3</sup> )	成形性	強度 (kg/cm <sup>2</sup> )
1	0%	3.27	○	3510
2	3%	3.27	○	3650
3	15%	3.29	○	4020
4	30%	3.29	○	4100
5	75%	—	×	—
6	100%	—	×	—

【0021】例3、例4では、成形性については表面処理をほとんどしない例1、例2と同等であり、密度、強度については、ともに高くなっているのがわかる。またEPMAによるイットリウムの分散状態の観察によると、例3、例4の焼結体のイットリウム濃度勾配は例1の焼結体の半分になっていることがわかった。

【0022】

【発明の効果】本発明の窒化アルミニウム焼結体の製造

方法を用いることにより相対密度が99.5%以上のボアの少ない緻密な焼結体を得ることが可能である。このため焼結体の強度が向上し、実装基板において信頼性が向上し、商品価値の高い製品となる。またボアの少ない基板であるので薄膜用基板としても有用である。原料の一部を処理するため量産性にも優れており、その工業的価値は大である。

【公報種別】特許法第17条の2の規定による補正の掲載  
【部門区分】第3部門第1区分  
【発行日】平成13年2月13日(2001. 2. 13)

【公開番号】特開平6-219850  
【公開日】平成6年8月9日(1994. 8. 9)  
【年通号数】公開特許公報6-2199  
【出願番号】特願平5-34131  
【国際特許分類第7版】  
C04B 35/58 104  
【FI】  
C04B 35/58 104

【手続補正書】

【提出日】平成11年12月6日(1999. 12. 6)

【手続補正1】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0007

【補正方法】変更

【補正内容】

【0007】以下、本発明について詳細に説明する。なお、以下%は重量%を意味する。まず、原料となる窒化アルミニウム粉末としては不純物酸素が3%以下、好ましくは1.5%以下であることが望ましい。その粒度は平均粒径が10 $\mu$ m以下好ましくは2 $\mu$ m以下であることが望ましい。平均粒径が10 $\mu$ m超の粉は結晶性が低下するおそれがあり、好ましくない。

【手続補正2】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0009

【補正方法】変更

【補正内容】

【0009】本発明では、窒化アルミニウム原料粉末の

うちの一部にイットリウムアルコキシドを用いて表面処理する。表面処理する窒化アルミニウム原料粉末は、全体の5%~50%が望ましい。5%未満では分散性が不良となり、また50%超では凝集が多く成形性の低下を招くおそれがあるため、好ましくない。

【手続補正3】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0011

【補正方法】変更

【補正内容】

【0011】また、この際、溶解性を向上させ、加水分解条件を安定化させるためにアセチルアセトン等のキレート剤を添加してもよい。有機溶剤としてはメタノール、エタノール等のアルコール類、MEK(メチルエチルケトン)、MIBK(メチルイソブチルケトン)等のケトン類、1,1,1-トリクロロエタン等の塩素系有機溶剤が挙げられるが、イットリウムアルコキシドを適度に溶解するものであればこれらに限定されない。アルコキシドが完全に加水分解した後、速やかに有機溶剤を乾燥させ、表面処理された原料粉末を得る。